

PREGLED MERILNIH METOD ZA SPROTNO SPREMLJANJE USMERJENEGA STRJEVANJA INŽENIRSKIH MATERIALOV

A REVIEW OF MEASUREMENT METHODS FOR IN-SITU MONITORING OF DIRECTIONALLY SOLIDIFIED ENGINEERING MATERIALS

Mihael Brunčko, Ivan Anžel

Univerza v Mariboru, Fakulteta za strojništvo, Smetanova 17, 2000 Maribor, Slovenija
mihael.bruncko@uni-mb.si

Prejem rokopisa - received: 2000-11-08; sprejem za objavo - accepted for publication: 2000-11-24

Za doseg želenih fizikalnih in mehanskih lastnosti inženirskih materialov je ključnega pomena natančno spremljanje razvoja mikrostrukture pri izdelavi teh materialov. V prispevku je zbran pregled merilnih metod, s katerimi je mogoče kontrolirano spremljanje usmerjenega strjevanja. Predstavljene metode temeljijo na neporušnem in kontinuirnem ugotavljanju vrednosti vplivnih parametrov v bližini strjevalne fronte (G_{SF} - temperaturni gradient na strjevalni fronti, v_{SF} - hitrost potovanja strjevalne fronte, ΔT_{SF} - podhladitev strjevalne fronte, ugotavljanje oblike strjevalne fronte) med samim usmerjenim strjevanjem in jih je mogoče uporabiti raziskovalni in v industrijski praksi.

Ključne besede: merilne metode, usmerjeno strjevanje, vplivni parametri strjevanja

To achieve the required physical and mechanical properties of engineering materials, accurate monitoring of the microstructure evolution during the process of production is of crucial importance. This paper reviews some methods used for in-situ monitoring of the directional solidification process. Emphasis is given to the methods which allow nondestructive and online monitoring of the influence of parameters in the vicinity of the solidification front (G_{SF} - temperature gradient on the solidification front, v_{SF} - velocity of the solidification front, ΔT_{SF} - supercooling of the solidification front, determination of the interface shape) during the directional solidification process. The methods can be used in research and in industrial applications.

Key words: measurement methods, directional solidification, influence of solidification parameters

1 UVOD

Na izoblikovanje lite mikrostrukture in pojav morebitnih defektov v njej imajo največji vpliv hitrost strjevalne fronte v_{SF} , temperaturni gradient G_{SF} , podhladitev strjevalne fronte ΔT_{SF} in oblika te fronte. Za osnovni študij razvoja mikrostrukture pri strjevanju je zelo primerno usmerjeno strjevanje, kjer lahko z med seboj neodvisnim spreminjanjem G_{SF} in v_{SF} ugotavljamo vpliv teh parametrov na potek strjevanja in razvoj strjene mikrostrukture. Informacije o spreminjanju G_{SF} in v_{SF} vzdolž odlitka dobivamo navadno z merjenjem temperature s termoelementi, ki so nameščeni v njegovi notranjosti ali na stenah kokile. Takšen način merjenja pa ima nekatere omejitve:

- merjenje temperature je možno le v določenih točkah v primeru namestitve termoelementov na steno kokile le-ti ne kažejo dejanske temperature v notranjosti odlitka
- sama prisotnost termoelementov v bližini strjevalne fronte moti potek strjevanja in lahko izzove nastanek morfološke nestabilnosti (potopitev termoelementov v talino)
- opisana metoda ne omogoča vpogleda v mikrostrukturo med njenim razvojem; pri tem nimamo v mislih samo določanja vplivnih parametrov strjevanja

ampak tudi geometrijskih parametrov mikrostrukture ($\lambda_1, \lambda_2, R, \dots$).

Zaradi tega je potrebno razvijati merilne metode, ki bi med procesom usmerjenega strjevanja omogočale sprotno neporušno merjenje parametrov strjevanja in geometrijskih parametrov mikrostrukture z zadostno natančnostjo, ne da bi pri tem metoda zmotila potek strjevanja. V prispevku je predstavljen pregled neporušnih metod (**Tabela 1**), njihov fizikalni princip merjenja, parametri, ki jih metode omogočajo meriti ter njihove prednosti in slabosti. Zahtevnejšemu bralcu predlagamo, da se o podrobnejšem opisu posameznih metod pouči v citirani literaturi.

2 SPREMLJANJE POTEKA USMERJENEGA STRJEVANJA Z ULTRAZVOKOM

Ena od možnih neporušnih merilnih metod spremljanja strjevalne fronte med kristalizacijo je ultrazvočna signalno-odmevna (pulz - echo) metoda. Položaj in hitrost strjevalne fronte trdo/tekoče med kristalizacijo spremljamo "in situ" z ultrazvočnim ehoskopom. Meritev temelji na merjenju časa, ki poteče od oddaje ultrazvočnega signala do sprejema odbitih valov na meji trdo/tekoče. Ehoskop je naprava (**slika 1**), ki s sonde

Tabela 1: Pregled neporušnih merilnih metod

Table 1: The review of non-destructive measurement methods

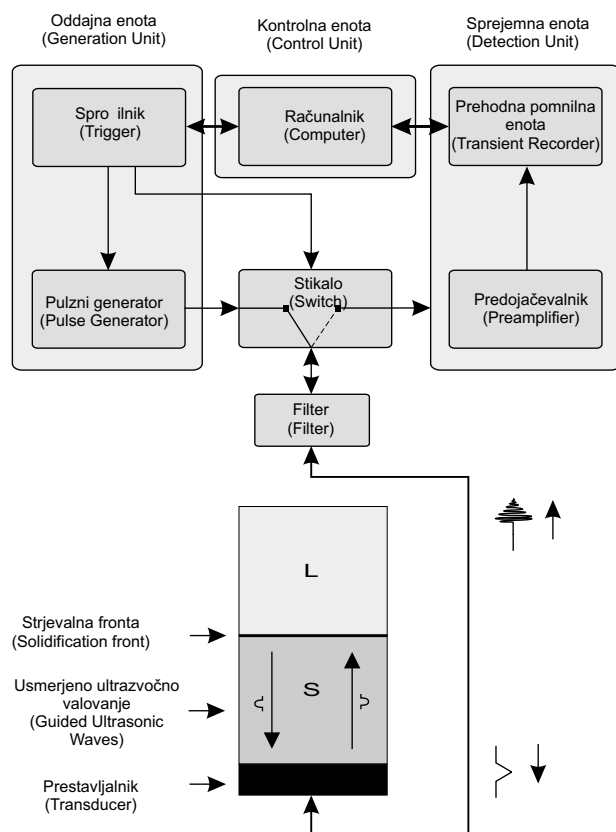
MERILNA METODA	VPLIVNI PARAMETRI USMERJENEGA STRJEVANJA				
	G_{SF}	T_{SF}	ΔT_{SF}	x_{SF}, v_{SF}	Oblika strjevalne fronte
Ultrazvok	-	-	-	✓	✓
CCD-kamera	✓	✓	-	✓	✓
Projekcijska radiografija (rentgenski žarki in žarki γ)	-	-	-	✓	✓
Merjenje termoelektrične napetosti - Seebeck-ov efekt	-	-	✓	-	-
Sprememba specifične električne upornosti snovi	-	-	-	✓	-

pošlje v odlitek kratek pulz usmerjenih ultrazvočnih valov z visoko frekvenco (100kHz)¹. Sondo ultrazvočne valovanja lahko priključimo na trdni (hladen) ali tekoči (vroč) konec odlitka ali pa na oba konca¹.

Položaj strjevalne fronte trdno/tekoče izračunamo iz poznanja hitrosti ultrazvočnih valov v trdnem delu odlitka c_0 in potrebnega časa potovanja odbitega signala τ od strjevalne fronte trdno/tekoče:

$$x_{SF} = \frac{c_0 \cdot \tau}{2} \quad (1)$$

Hitrost strjevalne fronte nato določimo s sprotnim merjenjem časovnega spreminjanja lege strjevalne fronte. Metoda omogoča določitev kritičnih parametrov

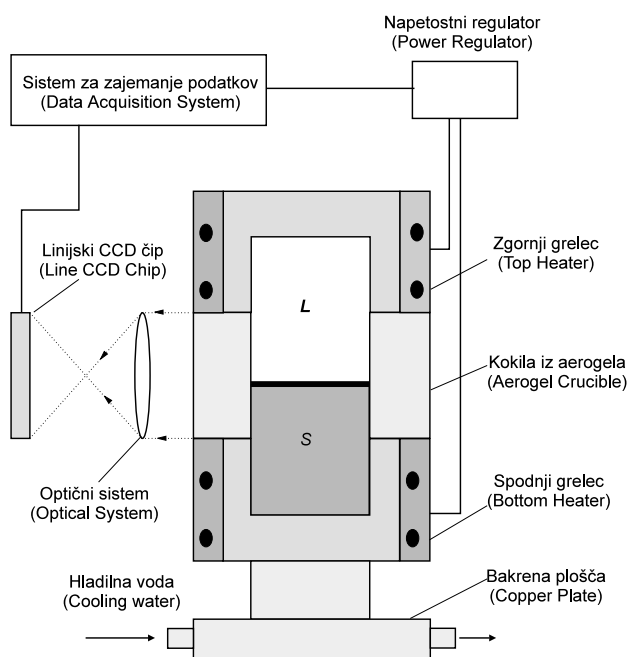


Slika 1: Shematični prikaz ultrazvočne metode
Figure 1: Schematic design of ultrasonic method

strjevanja za različne morfološke oblike (ravna fronta, celično, dendritno strjevanje) z veliko natančnostjo (10 μm) v realnem času¹.

3 UPORABA TERMOGRAFIJE PRI SPREMLJANJU PROCESA USMERJENEGA STRJEVANJA ZLITIN

Spremljanje strjevanja neprozornih kovin in zlitin je možno z napravami za termično zajemanje slike, ki merijo gostoto izsevanega svetlobnega toka. V nadaljnjem procesiranju transformiramo gostoto svetlobnega toka v temperaturno sliko. Pri teh meritvah je potrebna uporaba kokile iz transparentnega materiala, ki prepušča svetlobno valovanje. Najprimernejši material s takšnimi lastnosti je aerogel. To je porozen material z majhnim koeficientom termične prevodnosti ter z dobro prepustnostjo za vidno in infrardečo svetlobo^{2,3}. Avtorji v literaturi² so za spremljanje usmerjenega strjevanja



Slika 2: Shematični prikaz naprave za optično spremljanje strjevanja
Figure 2: Schematic design of the apparatus for the optical monitoring of the solidification

osrednji del vzorca obdali z valjem iz aerogela, tako da je bilo možno merjenje svetlosti vzorca z linijsko CCD - kamero (slika 2).

Konverzija sevanja v temperaturo je dokaj zapletena, saj odlitek - merilni objekt ni absolutno črno telo, ampak se mu stopnja emisije spreminja s temperaturo. Pri merjenju moramo upoštevati tudi stopnjo emisije objektiva ter drugih elementov, ki so med merilnim objektom ter kamero. Da bi dosegli čimbolj natančno konverzijo sevanja v temperaturo je potrebno umerjanje kamere - kalibracija za vsako zlitino posebej. V viru³ so za eutektično zlitino Al-Si iz krivulje svetlosti ugotovili temperaturo eutektika (na mestu prehoda iz tekoče v trdno fazo se pojavi na krivulji svetlosti prevoj oz. postojišče) in tako direktno položaj strjevalne fronte S/L. Vzrok za nastanek prevoja je mogoče iskati v različnih emisijskih stopnjah tekoče in trdne faze. Iz znanega položaja prevojev na krivulji ter njihove časovne odvisnosti nato določimo še hitrost strjevalne fronte S/L.

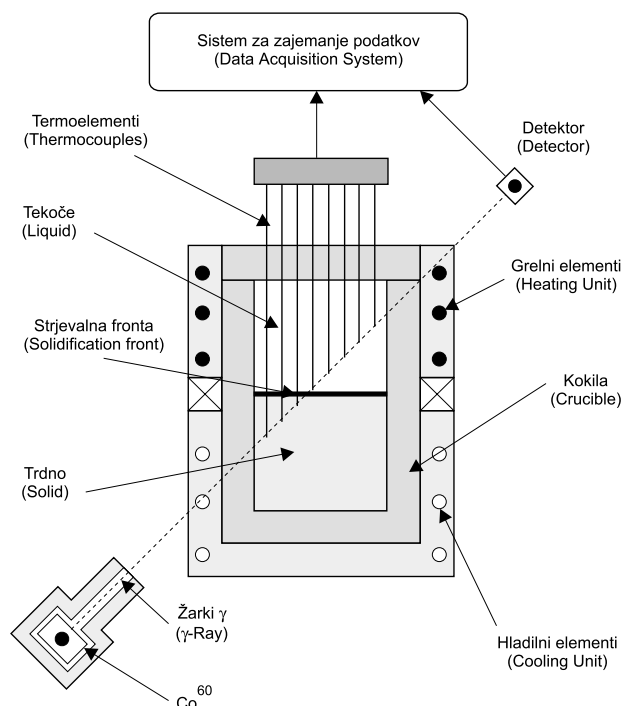
Termično zajemanje slike daje globlji pogled v proces strjevanja, ker lahko proces strjevanja spremljamo in-situ. Možno je direktno merjenje položaja strjevalne fronte S/L, iz katerega lahko ugotovimo, ali je bila hitrost strjevalne fronte konstantna ali pa se je med strjevanjem spreminjala. Z uporabo dodatne kamere je možno spremljati potek strjevanja tridimenzionalno, kar omogoča določitev oblike strjevalne fronte.

4 PROJEKCIJSKA RADIOGRAFIJA

Z uporabo rentgenskih žarkov in žarkov γ ter z računalniško tomografijo (tehnika, ki se uporablja v medicini za pregled možganov) lahko prav tako spremljamo lego, hitrost in obliko strjevalne fronte trdno/tekoče. Naprava za spremljanje procesa usmerjenega strjevanja je v tem primeru sestavljena iz rentgenskega izvira ali izvira žarkov γ ter detektorja, ki je nameščen na drugi strani odlitka in šteje število prepuščenih fotonov skozi material (slika3). Izbira radioaktivnega izvira je odvisna od debeline vzorca ter gostote materiala^{4,5}.

a) Veliki vzorci

Za preiskavo velikih vzorcev (debeline $d > 1\text{ mm}$) uporabimo izvir žarkov γ (radioizotopi Co^{60} , visokoenergijski linearni pospeševalnik) z energijo fotonov velikostnega razreda nekaj MeV⁴. Metoda temelji na štetju fotonov, ki prodrejo skozi odlitek. Usmerjeni curek fotonov se delno absorbira, odbije ali razprši, del pa prodre skozi material. Za koliko se bo zmanjšala gostota žarkov, je v veliki meri odvisno od gostote materiala v kokili. Navadno je gostota kovin v trdnem agregatnem stanju za 4 do 12% večja kot pa v tekočem agregatnem stanju. Zaradi spreminjanja deleža trdne in tekoče faze se spreminja razdalja v trdnem in tekočem, skozi katero morajo prodreti fotoni. Z detektorjem štejemo število fotonov, ki prodrejo skozi odlitek. Dolžino tekočega dela odlitka x_{SF} (ali trdnega dela) in s



Slika 3: Shematični prikaz meritve položaja strjevalne fronte z žarki γ
 Figure 3: Schematic design of position measurements of solidification front with γ ray

tem lego strjevalne fronte določimo z uporabo absorpcijskega zakona⁴:

$$\ln\left(\frac{N}{N_S}\right) = \mu(\rho_S - \rho_L)x_{SF} \quad (2)$$

N število fotonov, ki so prodrli skozi delno strjen odlitek na detektor

N_S število fotonov, ki so prodrli skozi popolnoma strjen odlitek

$\rho_S - \rho_L$ razlika gostote materiala med trdno in tekočo fazo

μ masni absorpcijski koeficient

x_{SF} lega strjevalne fronte

S pomikanjem in rotacijo kokile lahko določimo lego katerekoli točke na strjevalni fronti, kar nam omogoča s računalniško tomografijo rekonstrukcijo oblike strjevalne fronte. Glavna slabost metode so dolgi časi, potrebni za zajemanje in obdelavo podatkov, kar ne omogoča spremljanje strjevanja v realnem času, ampak v nekajminutnem zamiku. Zaradi izvira žarkov γ je treba za zaščito operaterja pred radioaktivnim sevanjem celotno napravo obdati z debelim betonskim plaščem, kar pa močno poslabša možnosti uporabe te metode v industrijske namene.

b) Tanki vzorci

Opazovanje razvoja mikrostrukture med potekom usmerjenega strjevanja je možno tudi v primeru, ko je vzorec zelo tanek ($d < 1\text{ mm}$) z rentgensko topografijo oz. presežno elektronsko mikroskopijo^{6,7}. Metoda omogoča "in situ" spremljanje razvoja mikrostrukture in

vizualizacijo strjevalne fronte trdno/tekoče z veliko hitrostjo ter ločljivostjo $< 5\mu\text{m}$, ne da bi motila toplotni tok v talini. Kot izvir rentgenske svetlobe uporabljamo linearni pospeševalnik z energijo fotonov od 10 do 100 keV^{6,7,8}. Metode preseвне mikroskopije so bile do sedaj zelo redko uporabljene pri spremljanju procesov strjevanja zaradi kompleksnosti pretvorbe signala v vidno sliko.

Pri projekcijski radiografiji je ločljivost omejena s premerom snopa (velikostnega razreda nekaj μm), povečava pa je odvisna od oddaljenosti med vzorcem in izvirom (a) ter razdalje med vzorcem in detektorjem (b). Povečavo določimo po enačbi:

$$M = \frac{a+b}{a} \quad (3)$$

Projekcijska radiografija omogoča postavitev vzorca med izvir in detektor. Za doseg čim večje povečave je treba kokilo postaviti čim bližje izviru rentgenskih žarkov, kar v praksi zahteva posebno konstrukcijo naprave za usmerjeno strjevanje. V literaturi je opisana uporaba uporabne peči z vodno hlajenim ohišje. Na ohišju je na mestu opazovanja narejeno okence iz aluminijaste folije, ki je odporno proti visokim temperaturam ter hkrati minimalno zmanjšuje gostoto energijskega toka rentgenskih žarkov. Vzorec se vleče s konstantno hitrostjo, tako nastala strjevalna fronta trdno/tekoče relativno miruje glede na žarek in je v bližini njegovega žarišča. Divergentne rentgenske žarke, ki prodrejo skozi vzorec, sprejmemo z NaI-detektorjem (scintilacijski detektor), ki jih pretvori v vidno sliko, ki jo nato posnamemo s CCD-kamero. Večji mikrostrukturni elementi bolj prepuščajo rentgenske žarke in so na sliki obarvani temneje, manjši delci pa so lahko popolnoma nevidni, saj oddajo prešibak signal, ki ga ni mogoče zaznati. Pri strjevanju čistih kovin je razlika kontrasta med trdno in tekočo fazo manj kot dva odstotka, kar zelo otežuje uporabo te metode. Večjo razliko kontrasta dosežemo v zlitinah zaradi pojava zlitinskih elementov na strjevalni fronti trdno/tekoče. Velikost kontrasta je proporcionalna z razliko med

atomske številke posameznih elementov in njihovo koncentracijo v zlitini⁸. Takšna naprava omogoča namestitev vzorca 3 mm od izvira rentgenskih žarkov ter doseg povečave do 160-krat in zato opazovanje mikrostrukturnih elementov premera od 3 do 6 μm ⁷.

5 MERJENJE PODHLADITVE STRJEVALNE FRONTE S SEEBECKOVO TERMOELEKTRIČNO NAPETOSTJO

V literaturi^{9,10,11} avtorji navajajo metodo merjenja podhladitve strjevalne fronte, ki temelji na principu delovanja termoelementa. Vzorec, sestavljen iz tekočega in trdnega dela, predstavlja termoelement, v katerem se zaradi različnih termoelektričnih lastnosti trdne in tekoče faze pojavi termoelektrična napetost. Merjenje podhladitve strjevalne fronte je izvedeno z napravo za usmerjeno strjevanje, ki omogoča, da ustvarimo na vzorcu dve strjevalni fronti: stacionarno ter pomikajočo (slika 4). V vzorcu se med usmerjenim strjevanjem pojavi naslednja termoelektrična napetost:

$$E_s = \int_A^B \eta dT \quad (4)$$

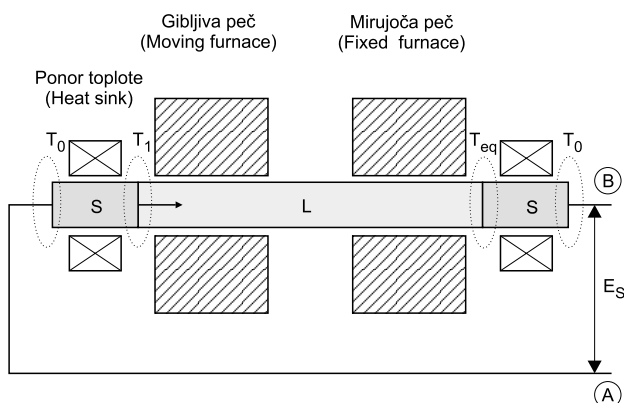
η absolutni Seebeckov koeficient

Ob predpostavki, da sta Seebeckova koeficienta v trdnem η_s in tekočem η_L konstantna v temperaturnem območju (T_{eq} , $T_1 = T_{eq} + \Delta T$), je termoelektrična napetost enaka^{10,11}:

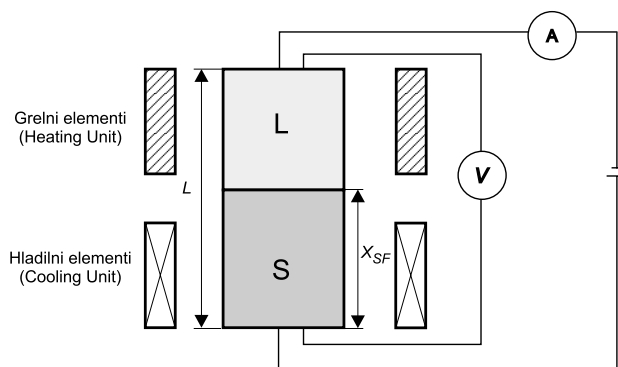
$$E_s = \eta_s (T_1 - T_0) + \eta_L (T_{eq} - T_1) + \eta_s (T_0 - T_{eq}) = (\eta_s - \eta_L) \Delta T$$

$$E_s = \eta_{SL} \Delta T \quad (5)$$

V primeru monokristalne mikrostrukture z ravno strjevalno fronto je podhladitev taline direktno proporcionalna izmerjeni termonapetosti (izraz 5). Pri spremembi oblike strjevalne fronte iz ravne v celično ali dendritno pa podhladitev taline ni več proporcionalna izmerjeni termonapetosti. Pojav mej kristalnih zrn, izločanje drugih faz (evtektik, monotektik, ...) v mikrostrukтури in fasetirana morfologija rasti prav tako pomembno vplivajo na obliko Seebeckovega signala.



Slika 4: Merjenje termoelektrične napetosti
Figure 4: Measurement of thermoelectric voltage



Slika 5: Shematični prikaz meritve
Figure 5: Schematic design of measurement

Tako je treba za vsako posamezno morfologijo strjevanja razviti poseben model, ki upošteva vpliv anomalij mikrostrukture na velikost Seebeckovega signala.

Metoda merjenja ne moti strjevanja, saj skozi vzorec ne teče tok iz zunanjšega izvira. Kljub temu ima ta metoda nekatere omejitve; običajno imajo kovine in zlitine majhno razliko Seebeckovega koeficienta ob fazni transformaciji trdno/tekoče, zato so potrebna natančna merjenja in dragi merilni instrumenti, kot tudi precizno načrtovanje same naprave za usmerjeno strjevanje.

6 MERJENJE SPREMEMBE SPECIFIČNE ELEKTRIČNE UPORNOSTI VZORCA

Specifična električna upornost večine kovin v tekočem agregatnem stanju tik nad temperaturo tališča je od 1,5-do 2,3-krat večja od upornosti kovin v trdnem agregatnem stanju tik pod temperaturo tališča^{12,13}. Zaradi spremembe deležev trde in tekoče faze med usmerjenim strjevanjem se spreminja tudi specifična upornost odlitka (slika 5):

$$\rho_{odlitka} = \frac{x_{SF}}{L} \cdot \rho_S + \left(1 - \frac{x_{SF}}{L}\right) \cdot \rho_L \quad (6)$$

Ob znani dolžini odlitka L in njegovi izmerjeni specifični upornosti $\rho_{odlitka}$ je položaj strjevalne fronte enak:

$$x_{SF} = L \cdot \frac{1 - \frac{\rho_{odlitka}}{\rho_L}}{1 - \frac{\rho_S}{\rho_L}} \quad (7)$$

Za specifični upornosti trdne ρ_S in tekoče ρ_L faze smo v literaturi⁹ našli predpostavko, da sta temperaturno neodvisni, kar bistveno poenostavi meritev, vendar pa tudi poslabša njeno natančnost. Ob upoštevanju temperaturne odvisnosti specifične upornosti trdne in tekoče faze je možno model še izboljšati, kar omogoča reprezentativnejše merjenje položaja in hitrosti strjevalne fronte.

Za merjenje spremembe specifične električne upornosti se navadno uporablja štiritočkovna metoda s katero ločimo tokovne in napetostne kontakte in s tem zmanjšamo napako zaradi upornosti merilnih žic v primerjavi z osnovno dvožično metodo. Da se izognemo vplivom termonapetosti na merjeno el. upornost, izvedemo meritev v obeh polaritetnih smereh toka skozi vzorec (el. upornost vzorca je enaka povprečju obeh meritev)¹⁴.

7 SKLEPI

Neporušne metode s svojo ločljivostjo in odzivnostjo omogočajo spremljanje vplivnih parametrov strjevanja

(v_{SF} , G_{SF} , ΔT_{SF}) v bližini strjevalne fronte trdno/tekoče, kot tudi oblike razvijajoče se mikrostrukture. Z njimi lahko uspešno "in situ" ugotovljamo nastanek morfološke nestabilnosti (prehod iz ravne strjevalne fronte v celično) in merimo geometrijske mikrostrukturne parametre (λ_1 , λ_2 , R , ...), ki določajo fizikalne in mehanske lastnosti materiala. Slabost obravnavanih metod pa je, da dajejo reprezentativne rezultate le v primeru enovite mikrostrukture (ravna strjevalna fronta, monokristalno strjevanje), pri pojavu kompleksne mikrostrukture (celična in dendritna morfologija, pojav kristalnih mej ter drugih defektov) pa je interpretacija merjenega signala dokaj zapletena. Zato se v praksi uveljavlja uporaba kombinacije posameznih metod (npr.: projekcijska radiografija se uporablja v kombinaciji z merjenjem spremembe termoelektrične napetosti ali z merjenjem spremembe specifične upornosti vzorca), ki bi omogočile tem lažje ocenjevanje vpliva posameznih mikrostrukturnih elementov na merjeni signal, kar pa bistveno vpliva na ceno merilne metode.

8 LITERATURA

- M. Schmachtl, A. Schievenbusch, G. Zimmermann, W. Grill, *Ultrasonics*, 38, (1998), 291
- T. Buchholz, J. Alkemper, K. Murakami, L. Ratke, *Materials Science Forum*, 215-216, (1996), 291
- J. Altkemper, S. Sous, C. Stöcker, L. Ratke, *Journal of Crystal Growth*, 191, (1998), 252
- J. H. Chun, R. C. Lanza, N. Saka, M. M. Hytros, *Annals of the CIRP*, 44, (1995), 1, 181
- J. H. Chun, N. Saka, M. Hytros, R. C. Lanza, M. Jureidini, *Monitoring the Solidification of Metal Castings*, E-Lab online, 1998, April - June, 1-5, cited 2000-02-16. Available from [www: http://web.mit.edu/energylab/www/e-lab/apr-june98/art2.html](http://web.mit.edu/energylab/www/e-lab/apr-june98/art2.html)
- G. Grange, J. Gastaldi, C. Jourdan, B. Billia, *Journal of Crystal Growth*, 151, (1995), 192
- P. A. Curreri, W. F. Kaukler, S. Sen, P. Peters, *Application of Real-Time X-Ray Transmission Microscopy to Fundamental Studies of Metal Alloy Solidification*, Spacebound97, *Materials Science*, (1997), cited 2000-05-23. Available from [www: http://www.science.sp-agency.ca/Spacebound97/Materials-Science/Curreri/curreri.htm](http://www.science.sp-agency.ca/Spacebound97/Materials-Science/Curreri/curreri.htm)
- W. F. Kaukler, P. A. Curreri, *X-ray microscope for metal solidification studies*, cited 2000-05-16, available from [www: http://www.ssl.msfc.nasa.gov/ssl/msad/xray/xraypg4.htm](http://www.ssl.msfc.nasa.gov/ssl/msad/xray/xraypg4.htm)
- A. Rouzaud, J. J. Favier, D. Thevenard, *Adv. Space Res.*, 8, (1988), 12, 49
- J. J. Favier, A. Rouzaud, *Adv. Space Res.*, 6, (1986), 5, 111
- R. Abbaschian, H. Groh III, E. Leonardi, V. Timchenko, G. V. Davis, *Materials Science Forum*, 329-330, (2000), 235
- T. Iida, R. I. L. Guthrie, *The Physical Properties of Liquid Metals*, 2nd ed., Clarendon Press, Oxford 1993, 232
- S. Spaić, *Fizikalna metalurgija 1*, Fakulteta za naravoslovje in tehnologijo, Oddelek za montanistiko, Ljubljana, 1996, 135
- F. Nava, K. N. Tu, O. Thomas, J. P. Senateur, R. Madar, A. Borghesi, G. Guizzetti, *Materials Science Reports*, 9, (1993), 141